PCT/JP2004/009146

10/562679

明細書

内燃機関の吸気系部品用繊維強化樹脂組成物 技術分野

- [0001] 本発明は、内燃機関の吸気系部品用の樹脂組成物に関する。 背景技術
- [0002] 内燃機関の吸気系には、内燃機関の吸気通路を構成するエアダクト、内燃機関の 吸気通路に設けられ、吸気騒音を低減するレゾネータ又はサイドブランチ、内燃機関 の吸気通路中のダストを除去するエアクリーナが設けられる。
- [0003] 内燃機関が作動し、空気が内燃機関に導かれる際、これらの吸気系部品には吸気 騒音が発生する。吸気系部品の吸気騒音を低減するのには、従来、部品の曲げ弾 性率を高め、且つ部品の板厚を厚くする手法が採用されていた。例えばポリプロピレ ン樹脂に剛性補強材としてのタルクを40wt%程度配合した樹脂組成物を用い、且 つ部品の板厚を厚くする手法が採用されていた。しかしこの手法では、必然的に部 品の重量が重くなってしまうという問題があった。

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0004] 内燃機関の吸気騒音の周波数域は例えば100~400Hz程度であり、比較的低い。本発明者は、この内燃機関の吸気騒音の周波数域が低いことに着目した。そして、吸気系部品の曲げ弾性率を高め、且つ比重を小さくすることで、吸気系部品の共鳴周波数を高周波数にシフトすることができることを知見した。吸気系部品の共鳴周波数を高周波数にシフトすることにより、吸気系部品の共鳴周波数と吸気騒音の周波数域とを懸け離すことができ、これにより、吸気系部品における低周波数域の吸気騒音を低減することができる。
- [0005] そこで本発明は、吸気系部品の曲げ弾性率を高め、且つ比重を小さくすることができる吸気系部品用組成物を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0006] 上記課題を解決するために、請求項1の発明は、MFR(230℃、2.16kg荷重)40

- ~70g/10分のブロックポリプロピレン系樹脂を60~80wt%、ガラス繊維及びマイカを両方で20~40wt%含むことを特徴とする。
- [0007] また、請求項2の発明は、MFR(温度230℃、荷重2.16kg)40~70g/10分の ブロックポリプロピレン系樹脂を58~78wt%、酸により変性されたポリプレン系樹脂 を1~2wt%、ガラス繊維及びマイカを両方で20~40wt%含むことを特徴とする。
- [0008] 本発明の吸気系部品とは、具体的には内燃機関の吸気通路を構成するエアダクト 、内燃機関の吸気通路に設けられ、吸気騒音を低減するレゾネータ又はサイドブラン チ、内燃機関の吸気通路中のダストを除去するエアクリーナのいずれかである。
- [0009] 請求項4の発明は、MFR(温度230℃、荷重2.16kg)40~70g/10分のブロック ポリプロピレン系樹脂を60~80wt%、マイカを20~40wt%含むことを特徴とする内 燃機関の吸気系部品用繊維強化樹脂組成物により上述した課題を解決する。 発明の効果
- [0010] 本発明によれば、吸気系部品の曲げ弾性率を高め、且つ比重を小さくすることができる吸気系部品用樹脂組成物が得られる。したがって、吸気系部品における吸気騒音を重量増とならずに低減することができる。
- [0011] また従来の吸気系部品用樹脂組成物と同一のイナータンスを狙った場合には、成形品の低比重化と肉厚の薄型化にて、さらなる軽量化も実現できる。 図面の簡単な説明
- [0012] [図1]図1は、ペレットの製造装置の一例を示す概略図である。
 - [図2]図2は、比重とイナータンスとの関係(図2-1)、曲げ弾性率とイナータンスとの関係(図2-2)、100Hz弾性率とイナータンスとの関係(図2-3)、曲げ弾性率/比重とイナータンスとの関係(図2-4)、100Hz弾性率/比重とイナータンスとの関係(図2-5)をそれぞれ示すグラフである。
 - [図3]図3は、周波数とイナータンスとの関係、及び周波数と遮音レベルとの関係を示すグラフである。
 - [図4]図4は、板厚を2mm、2.5mm、3.0mm、4.0mmと変更した場合の周波数とイナータンスとの関係を比較したグラフである。
 - [図5]図5は、板厚とイナータンス共振周波数とをプロットしたグラフである。

発明を実施するための最良の形態

- [0013] 以下、本発明の吸気系部品用繊維強化樹脂組成物の実施形態を説明する。吸気系部品としては、内燃機関の吸気通路を構成するエアダクト、内燃機関の吸気通路に設けられ、吸気騒音を低減するレゾネータ又はサイドブランチ、内燃機関の吸気通路中のダストを除去するエアクリーナのいずれかが用いられる。
- [0014] 吸気系部品用繊維強化樹脂組成物は、MFRが40~70g/10分のブロックポリプロピレン系樹脂を60~80wt%、ガラス繊維及びマイカを両方で20~40wt%含む。
- [0015] ポリプロピレンの種類としては、プロピレンの重合体であるブロックポリプロピレンが 用いられる。
- [0016] ポリプロピレンのMFR(温度230℃、荷重2.16kg)は、40~70g/10分のものが望ましく、特に50~60g/10分のものが望ましい。ここでポリプロピレンのMFRとは、JISK7210−1999に準拠し、温度230℃、荷重2.16kgの条件で測定した値である。MFRが40g/10分以下であると成形体中のガラス繊維の分散性が低下し、成形体の外観不良が見られることがある。MFRが60g/10分より大きいと、衝撃強度に劣る可能性があり、好ましくない。
- [0017] このプロピレンの重合体は、重合用触媒を用いてプロピレン等をスラリー重合、気相重合、あるいは液層塊状重合することにより製造される。プロピレン重合体を製造する重合方式としては、バッチ重合、連続重合のどちらの方式も採用することができる。ポリプロピレンのMFRは多段重合や、重合された樹脂を分解することで調整できる。
- [0018] MFRが40~70g/10分のブロックポリプロピレン系樹脂に、マレイン酸等の酸により変性されたポリプロピレン系樹脂を組成物作製時に混合するのが望ましい。マレイン酸により変性されるポリプロピレンのMFRとしては、5~800g/10分が好ましい。MFRが低すぎると分散不良を起こしやすく、800g/10分より大きいと衝撃強度の低下を招く場合がある。マレイン酸により変性されるポリプロピレンの結晶化温度(Tc)は、105~125℃が好ましく、特に110~120℃が好ましい。マレイン酸の付加量は、0.1~10wt%の範囲が好ましく、特に0.8~8wt%が好ましい。
- [0019] ガラス繊維としては、Eガラス(Electrical glass)、Cガラス(Chemical glass)、Aガラス(Alkali glass)、Sガラス(High strength

glass)、耐アルカリガラス等のガラスを溶融紡糸してフィラメント状の繊維にしたものを用いることができる。

- [0020] ガラス繊維の繊維径は、好ましくは3~30μmが好ましく、さらに好ましくは8~20μmである。繊維径が過小であると、繊維が破損し易いため、強化繊維束の生産性が低下することがある。またペレットを連続製造するときに、繊維を多数束ねなければならなくなり、繊維束をつなぐ手間が煩雑になったり、生産性が低下したりするため好ましくない。
- [0021] 樹脂組成物中のガラス繊維の繊維長は、1.5~60mmが好ましい。短繊維樹脂組成物として好ましいのは1.5~8mmであり、長繊維樹脂組成物として好ましいのは12~50mmである。
- [0022] ガラス長繊維の原料としては、連続状ガラス繊維束が用いられ、これはガラスロービングとして市販されている。通常、その平均繊維径は4~30 μ m、フィラメント集束本数は400~10,000本、及びテックス番手は300~20,000g/kmが好ましい。特に平均繊維径9~23 μ m、集束本数1,000~6,000本のものが望ましい。
- [0023] 他にガラス繊維として、ガラスチョップドストランドを用いることもできる。このチョップドストランドの長さは通常3~50mm、繊維の径は3~25 μ m程度、好ましくは8~14 μ mのものである。
- [0024] ガラス繊維表面に熱可塑性樹脂との界面接着性付与又は向上のため、表面処理(例えばシランカップリング剤処理)が施されているものが好ましい。このような処理のされた強化繊維を用いると、強度と外観が良好な成形体が得られる。
- [0025] ガラス繊維の表面処理剤としては、所謂シラン系カップリング剤、チタン系カップリング剤として従来からあるものの中から適宜選択することができる。シラン系化合物としては、例えば γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 β -(3, 4-エポキシシクロヘキシル) エチルトリメトキシシランビニルトリエトキシシラン、ビニルートリス(β -メトキシエトキシ)シラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 β -(2, 4-エポキシシクロヘキシル) エトキシメトキシシラン、 γ -(2-アミノエチル) アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン等の

アミノシランやエポキシシランが採用できる。特に前記アミノ系シラン化合物を採用するのが好ましい。

- [0026] 樹脂組成物の形状は、パウダー状、フレーク状、ペレット状のいずれでも構わない。 ガラス繊維樹脂組成物の比重は1.2以下が好ましく、より好ましくは1.15以下であ る。ガラス繊維樹脂組成物中のガラス繊維は5~15wt%、マイカは15~25wt%が 好ましい。
- [0027] また樹脂組成物は、ポリプロピレン樹脂と実質的に平行に配列されたガラス繊維とからなり、ガラス繊維長がペレット長に実質的に等しいペレットを含むのが望ましい。 樹脂組成物のペレット長は2~200mmの長さである。ペレット長は3~100mmの範囲が好ましく、3~50mmの範囲がさらに好ましく、6~25mmの範囲であるのがさらにより好ましい。
- [0028] 次に樹脂組成物の製造方法について説明する。まず樹脂ペレットを製造する。樹脂ペレットは、数千本からなるガラス繊維のロービングを含浸ダイスに導き、フィラメント間に溶融した熱可塑性樹脂を均一に含浸させた後、必要な長さ(2~200mm)に切断することにより容易に得ることができる。
- [0029] 図1はペレットの製造装置の一例を示す。例えば、押出機1の先端に設けられた含 浸ダイス2中に押出機1より溶融樹脂を供給する一方、連続状ガラス繊維束Fを通過 させ、該ガラス繊維束Fに溶融樹脂を含浸させた後ノズルを通して引抜き、2~50mmの長さにペレタイズする方法がとられる。ガラス繊維束Fは引き出しロール3により 含浸ダイス2から引き出され、冷却装置4で冷却される。樹脂が含浸されたガラス繊維はペレタイザ5によりペレタイズが行われる。各成分を所定の割合にてロールミル、バンバリーミキサー、ニーダーなどでよく混練分散させることができる。タンブラー式ブレンダー、ヘンシェルミキサー、リボンミキサーなどでドライブレンドしてもよい。これを一軸押出機、二軸押出機などで混練してペレット状の成形原料とする。
- [0030] ペレットには、用途に応じて各種の添加剤、例えば、分散剤、滑剤、可塑剤、難燃剤、酸化防止剤(フェノール系酸化防止剤、リン酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤)、帯電防止剤、光安定剤、紫外線吸収剤、結晶化促進剤(増核剤)、発泡剤、架橋剤、抗菌剤等の改質用添加剤、顔料、染料等の着色剤、カーボンブラック、酸化チタ

ン、ベンガラ、アゾ顔料、アントラキノン顔料、フタロシアニン、等の公知の添加剤を添加することができる。これらの添加剤は、ペレット製造時に添加してペレット中に含有させるか、ペレットから成形体を製造するときに添加してもよい。

- [0031] このペレット、マイカ、及びMFRが40~70g/10分のブロックポリプロピレン系樹脂を混合し、その後成形して成形品を得る。
- [0032] 成形品の成形方法には、射出成形法、押出成形法、中空成形法、圧縮成形法、射出圧縮成形法、ガス注入射出成形、又は発泡射出成形等の公知の成形法をなんら制限なく適用できる。特に射出成形法、圧縮成形法及び射出圧縮成形法が好ましい

実施例

- [0033] 図1におけるペレット製造装置を用いて繊維強化樹脂組成物を作成した。
- [0034] 製造条件

ダイ:50mm φ の押出機先端に取り付け、含浸部に4本のロッドを直線状に配置した。繊維径:アミノシランで表面処理された繊維径16 μ mのガラス繊維を170本束ねたガラスロービングを使用した。予熱温度:200℃。熱可塑性樹脂:MFR50のブロックポリプロピレン+カルボン酸変性ポリプロピレン。溶融温度:290℃。ロッド:4本 6 mm(直径)×3mm(長さ)。上記条件下で、テンションロール群で繊維束の量を調整しつつ、ダイ内に送り込み含浸を行い、その後ダイから引き出し、冷却し、ペレタイズを行い、ガラス繊維が50wt%の樹脂組成物を作成した。

- [0035] この樹脂組成物:マイカM/B(マイカ40%):上記ブロックポリプロピレン=20:50:30でドライブレンドし、射出成形機(東芝機械製、IS80EPN)を使用し、成形体を作製した。製造された実施例を比較してみた。
- [0036] 実施例、比較例の樹脂組成物の組成を以下に示す。

実施例:ベースとなるPPに長繊維ガラス繊維10%及びマイカ20%を含有。

比較例1:ベースとなるPPに長繊維ガラス繊維40%含有。

比較例2:ベースとなるPPに長繊維ガラス繊維20%及びタルク30%を含有。比較例3:ベースとなるPPに長繊維ガラス繊維10%及びタルク20%を含有。比較例4:ベースとなるナイロン(PA6/PA66)に長繊維ガラス繊維10%及びミネラル10%を含有。

比較例5:ベースとなるナイロン(PA6/PA66)に長繊維ガラス繊維17%及びミネラル2 1%を含有。

比較例6:ベースとなるPPリサイクル材にタルク40%含有。

比較例7:ベースとなるPPにタルク40%含有。この比較例7が従来一般的に使用されていた。

[0037] 表1は、これらの実施例及び比較例の曲げ弾性率、エアクリーナのケース及びカバーに成形したときの重量、イナータンスを示す。イナータンスとは、吸気系の壁面に対し垂直方向に力(F)を与え、そのときの加速度レベル(a)による伝達関数である。すなわちイナータンスレベルが低いと、測定面が振動しづらいことになる。

[0038] [表1]

		内容	代表	代表物性值		 	重服		イナータンス代表
									值(dB)
	スーン材	含有物	軍羽	山げ弾性	CASE	比較例7	COVER	比較例7	
				率(Mpa)		との比較	,	との 比較	
実施例	PP	是繊維 GF10%	1.12	6230	626.9	-11.7%	641.0	-9.6%	21.5
		1214 20%					٠.		
比較例1	PP	長繊維 GF40%	1.22	8750	642.6	-5.2%	682.0	-3.8%	22.6
比較例2	ЬР	長機維 GF20%	1.36	8900	769.8	8.5%	772.0	8.9%	21.1
		1911/9 30%							
比較例3	PP	長 繊維 GF10%	1.12	5670	630.8	-11.1%	650.5	-8.3%	23.8
		1911 20%		-					٠
比 較 4	PA6/PA66	長 機能 GF10%	1.28	5380	748.3	5.4%	740.5	4.4%	36.1
	(20/20)	/ミネラル 10%							
比較倒 5	PA6/PA66	長繊維 GF17%	1.45	8570	844.7	19.0%	838.9	18.3%	32.9
	(50/50)	(ミネラル 21%		•					
比較倒 6	PP	4119 40%	1.24	3400	706.4	-0.5%	713.9	0.7%	27.8
	リサイクル村					-			
比較例7	PP	<i>ት ኮታ</i> 40%	1.23	4850	7.607		709.0	•	23.3

[0039] 表1から本実施例のエアクリーナでは、従来使用されていた比較例7に比べ比重を

10%程度小さくすることができ、且つイナータンスが小さくなる(すなわち振動しづらくなる)ことがわかる。なおイナータンスが最も小さいのは比較例2の場合であるが、比重が大きすぎて軽量化の効果はあまり期待できない。

- [0040] 図2は、これらの実施例及び比較例の比重とイナータンスとの関係(図2-1)、曲げ弾性率とイナータンスとの関係(図2-2)、100Hz弾性率とイナータンスとの関係(図2-3)、曲げ弾性率/比重とイナータンスとの関係(図2-4)、100Hz弾性率/比重とイナータンスとの関係(図2-4)、100Hz弾性率/比重とイナータンスとの関係(図2-5)をそれぞれ示す。ここで、曲げ弾性率とはゆっくり曲げたときの弾性率で、100Hz弾性率とは100Hzの周波数の動的弾性率である。
- [0041] これら図2-2及び図2-3のグラフからわかるように、曲げ弾性率とイナータンスとには相関関係がある。特に100Hz動的弾性率とイナータンスとはより強い相関関係がある。
- [0042] 本実施例の樹脂組成物では、100Hz動的弾性率が大きいからイナータンスを小さくすることができ、しかも図2-1に示されるように比重が小さい。これら曲げ弾性率が大きいことと、比重が小さいこととが相俟って、本実施形態のテーマである振動騒音を低減できることになる。なお、ベース材がナイロンの比較例4及び比較例5では、曲げ弾性率が高くなるが、イナータンスも高くなってしまう傾向がある。このため、振動騒音を低減し難い。
- [0043] 図3は、本実施例と比較例7とで、周波数とイナータンスとの関係、及び周波数と遮音レベルとの関係を比較したものである。遮音レベルとは、スピーカから音を出してみてエアクリーナからどれだけの音が出るかを表したものであり、遮音レベルが低ければ低いほど遮音性がある。この図から実施例は低周波数域でのイナータンス及び遮音レベルが低いのがわかる。なお、板厚は実施例と比較例7とで同一であり、本実施例では10%近く軽量化が図られている。
- [0044] 図4は、本実施例と比較例7とで、板厚を2mm、2.5mm、3.0mm、4.0mmと変更した場合の周波数とイナータンスとの関係を比較したものである。この図から同じ本実施例では同じ板厚の場合、共振周波数を上げ、低周波数域でのイナータンスを低くすることができるのがわかる。
- [0045] 図5は、本実施例及び比較例7の板厚とイナータンス共振周波数とをプロットしたグ

ラフである。図4から同一共振周波数であれば、イナータンスレベルは略同等といえる。本実施例はイナータンスレベルが優れており、比較例と同一イナータンスを狙った場合には、板厚を3mm⇒2.66mmまで薄型化できる。

[0046] 表2は、板厚を2.66mmにした本実施例と板厚を3mmにした比較例7とで、比重 ×板厚を比較したものである。比較例と同一イナータンスを狙った場合には、比重が 低減できることと板厚を低減できることとが相俟って、19.2%軽量化が図れる。

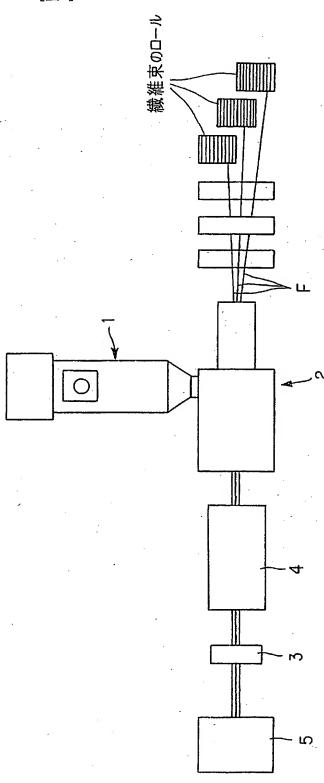
[0047] [表2]

•		材 料		比較例7の返回3mmと同等	<u> </u>	
		含有物	工里	のイナータンス板厚(mm)	比重×板厚	軽量化 メリット(%)
	比較例7	タルク 40%	1 23	300	3.69	
	実施例	長繊維GF10%+マイカ 20%	1 12	2.66	2 98	19.2

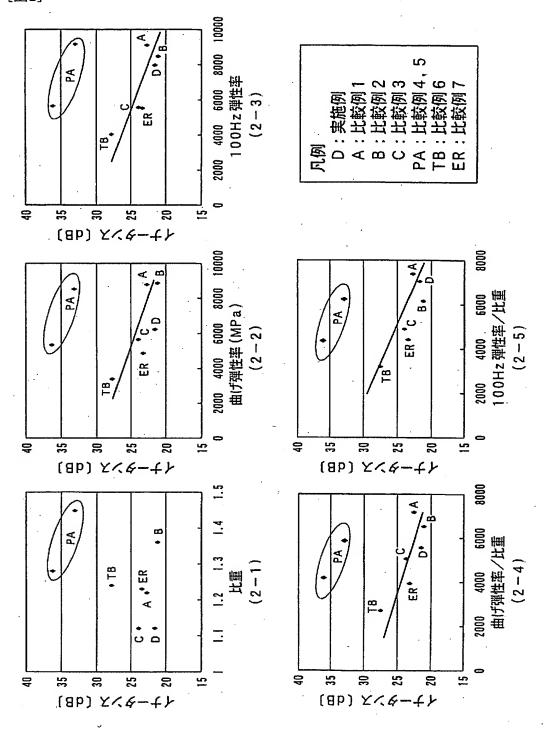
請求の範囲

- [1] MFR(温度230℃、荷重2.16kg)40~70g/10分のブロックポリプロピレン系樹脂を60~80wt%、ガラス繊維及びマイカを両方で20~40wt%含むことを特徴とする内燃機関の吸気系部品用繊維強化樹脂組成物。
 - [2] MFR(温度230℃、荷重2.16kg)40~70g/10分のブロックポリプロピレン系樹脂を58~78wt%、酸により変性されたポリプレン系樹脂を1~2wt%、ガラス繊維及びマイカを両方で20~40wt%含むことを特徴とする内燃機関の吸気系部品用繊維強化樹脂組成物。
 - [3] 前記吸気系部品は、内燃機関の吸気通路を構成するエアダクト、内燃機関の吸気 通路に設けられ、吸気騒音を低減するレゾネータ又はサイドブランチ、内燃機関の吸 気通路中のダストを除去するエアクリーナのいずれかであることを特徴とする請求項1 又は2に記載の内燃機関の吸気系部品用繊維強化樹脂組成物。
 - [4] MFR(温度230℃、荷重2.16kg)40~70g/10分のブロックポリプロピレン系樹脂を60~80wt%、マイカを20~40wt%含むことを特徴とする内燃機関の吸気系部品用繊維強化樹脂組成物。

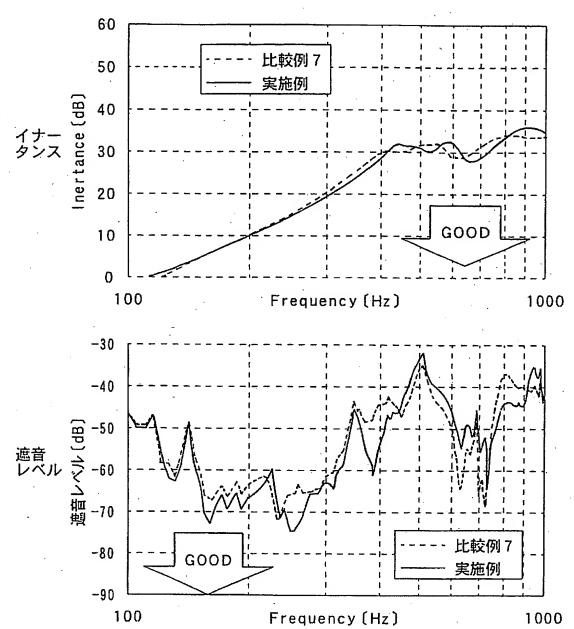
[図1]



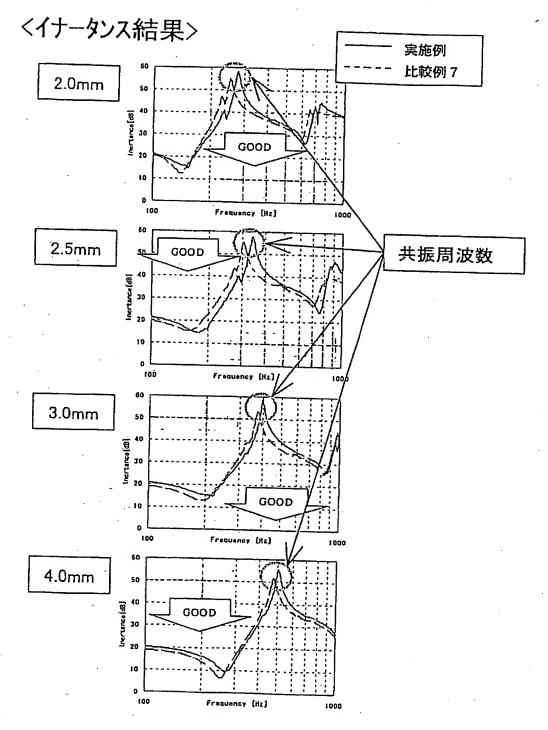
[図2]



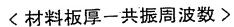


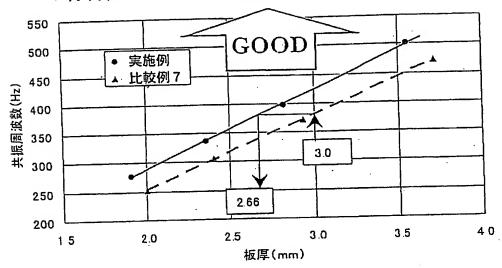


[図4]



[図5]





INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/009146

		LCI/UF.	2004/009146			
A. CLASSIFIC	CATION OF SUBJECT MATTER F02M35/10, C08L53/00					
According to In	ternational Patent Classification (IPC) or to both nation	nal classification and IPC				
B. FIELDS SE						
Minimum docum	nentation searched (classification system followed by	classification symbols)				
Int.Cl	F02M35/00-35/16	,				
· ·	•					
1		•	•			
Documentation	correhed other than minimum to an attitude					
Jitsuvo	searched other than minimum documentation to the ext Shinan Koho 1926-1996 T	ent that such documents are included in the Oroku Jitsuyo Shinan Koho	e fields searched			
		itsuyo Shinan Toroku Koho	1994-2004			
	• • •	•	1996–2004			
Electronic data b	pase consulted during the international search (name of	data base and, where practicable, search to	erms used)			
C POCIDES	TTG COVIGED THE TTO THE THE THE					
C. DOCOMEN	NTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
Category*	Citation of document, with indication, where a	Optopriate of the relevant passages	Relevant to claim No.			
x	<u></u>					
	JP 5-59233 A (Toyoda Gosei (Co., Ltd.),	1,3,4			
Y 09 March, 1993 (09.03.93),						
Par. Nos. [0004], [0014] to [0016], [0029]:						
	Fig. 1 (Family: none)					
	(ramily: none)		1			
Y JP 9-29026 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 2						
1	A 04 February, 1997 (04.02.97),					
<u> </u>	Dar Nos [0010] +- [0011]	, ,	1,3,4.			
	Par. Nos. [0010] to [0011], [0014] to [0017], [0030] to [0032]; Figs. 1 to 4					
	(Family: none)	4				
	(ramily: none)					
ı			·			
	*					
			-			
	•					
	•	_				
× Further do						
ruruner do	cuments are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.				
	ories of cited documents:	"T" later document published after the inte	emational filing date or priority			
"A" document de	efining the general state of the art which is not considered	date and not in conflict with the application	ation but cited to understand			
to be of particular relevance the principle or theory underlying the invention						
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an invent of considered novel or cannot be considered to involve an invent of step when the document is taken alone.						
					document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "Y" document is taken alone document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document	
"P" document pu	blished prior to the international filing date but later than	combined with one or more other such being obvious to a person skilled in the	documents, such combination			
the priority d	ate claimed	"&" document member of the same patent f				
Date of the actual	completion of the international search	Date of mailing of the international searce	ch report			
22 July	, 2004 (22.07.04)	10 August, 2004 (10	- 08 - 04)			
	•		• /			
Nome and!!						
	g address of the ISA/	Authorized officer				
vapanes	e Patent Office					
Facsimile No.		Telephone No				
	(second sheet) (January 2004)	Telephone No.				

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2004/009146

C (Continuation)). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		004/009146
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relev	ant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2000-297709 A (Unitika Ltd.), 24 October, 2000 (24.10.00), Par. Nos. [0012], [0020] to [0021]; Fig. (Family: none)	1	2 1,3,4
A	JP 2682921 B2 (Mitsui Petrochemical Indu Ltd.), 08 August, 1997 (08.08.97), Par. Nos. [0077], [0091] to [0105] & DE 69124937 C & CA 2056631 A & EP 488335 A2 & CN 1061984 A & US 5424104 A1 & KR 9600418 B & ES 2100923 T	stries,	1-4
A	JP 62-295940 A (Sumitomo Chemical Co., I 23 December, 1987 (23.12.87), Full text (Family: none)	td.),	2
A	JP 2-138349 A (Toyoda Gosei Co., Ltd.), 28 May, 1990 (28.05.90), Full text (Family: none)		2
		·	
		·	
		*	
	·		